

Patent PCT/JP 17 FEB 2005

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19)世界知的所有権機関
国際事務局



524920

(43)国際公開日
2004年3月11日 (11.03.2004)

PCT

(10)国際公開番号
WO 2004/020526 A1

(51)国際特許分類7:
C08L 83/04, A61K 7/00, 7/075

(OZAKI,Masaru) [JP/JP]; 〒299-0108 千葉県市原市
千種海岸2番2 東レ・ダウコーニング・シリコーン
株式会社 研究開発本部内 Chiba (JP).

(21)国際出願番号:
PCT/JP2003/010888

(81)指定国(国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB,
BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK,
DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU,
ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS,
LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NI,
NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG,
SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ,
VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(22)国際出願日:
2003年8月27日 (27.08.2003)

(84)指定国(広域): ARIPO特許 (GH, GM, KE, LS, MW, MZ,
SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア特許 (AM,
AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ特許
(AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB,
GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR),
OAPI特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW,
ML, MR, NE, SN, TD, TG).

(25)国際出願の言語:
日本語

(26)国際公開の言語:
日本語

(30)優先権データ:
特願2002-253540 2002年8月30日 (30.08.2002) JP

(71)出願人(米国を除く全ての指定国について): 東レ・ダ
ウコーニング・シリコーン株式会社 (DOW CORNING
TORAY SILICONE CO.,LTD.) [JP/JP]; 〒100-0005 東
京都千代田区丸の内一丁目1番3号 Tokyo (JP).

添付公開書類:
— 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される
各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語
のガイダンスノート」を参照。

(72)発明者; および
(75)発明者/出願人(米国についてのみ): 森田好次
(MORITA,Yoshitsugu) [JP/JP]; 〒299-0108 千葉県市
原市千種海岸2番2 東レ・ダウコーニング・シリ
コーン株式会社 研究開発本部内 Chiba (JP). 小林和
男 (KOBAYASHI,Kazuo) [JP/JP]; 〒299-0108 千葉県
市原市千種海岸2番2 東レ・ダウコーニング・シリ
コーン株式会社 研究開発本部内 Chiba (JP). 尾崎勝

(54)Title: AQUEOUS SUSPENSION OF CROSSLINKED SILICONE PARTICLES, AQUEOUS EMULSION OF OIL CON-
TAINING CROSSLINKED SILICONE PARTICLES, AND COSMETIC INGREDIENTS

(54)発明の名称: 架橋シリコーン粒子の水系サスペンション、架橋シリコーン粒子を含有するオイルの水系エマル
ジョンおよび化粧料原料

(57)Abstract: An aqueous suspension of crosslinked silicone particles, characterized by comprising (A) crosslinked silicone particles having a mean particle diameter of 0.1 to 500 μm , (B) N-acyl-N-hydrocarbyltaurine and/or a salt thereof, and (C) water; an aqueous emulsion of oil containing crosslinked silicone particles, characterized by comprising (A) crosslinked silicone particles having a mean particle diameter of 0.1 to 500 μm , (D) an oil, (B) N-acyl-N-hydrocarbyltaurine and/or a salt thereof, and (C) water, with the proviso that the component (A) is contained in droplets of the component (D) dispersed in water; and a cosmetic ingredient consisting of the suspension or the emulsion. The suspension and the emulsion are characterized by excellent stability, decreased load on the environment, and little influence on the human body, and exhibit excellent cosmetic functions such as moisturizing and smoothening, thus being extremely useful as cosmetic ingredients.

(57)要約: (A)平均粒径0.1~500 μm の架橋シリコーン粒子、(B)N-アシル,N-ハイドロカーボンタウリンお
よび/またはその塩、(C)水からなることを特徴とする架橋シリコーン粒子の水系サスペンション、(A)平均粒径
0.1~500 μm の架橋シリコーン粒子、(D)オイル、(B)N-アシル,N-ハイドロカーボンタウリンおよび/また
はその塩、(C)水からなり、水中に分散している(D)成分の液滴中に(A)成分が含有されていることを特徴とする架
橋シリコーン粒子を含有するオイルの水系エマルジョン、および、該水系サスペンションまたは該水系エマルジョ
ンからなる化粧料原料である。安定性に優れ、しかも、環境に対する負荷や人体に対する影響が少ないという特徴
を有する。加えて、潤いや滑らかさ等に優れた化粧機能性を有するので、化粧料原料として極めて有用である。

WO 2004/020526 A1

明細書

架橋シリコーン粒子の水系サスペンション、架橋シリコーン粒子を含有するオイルの水系エマルジョンおよび化粧料原料

5

技術分野

本発明は、架橋シリコーン粒子の水系サスペンション、架橋シリコーン粒子を含有するオイルの水系エマルジョンおよび化粧料原料に関する。詳しくは、安定性に優れ、しかも、環境に対する負荷や人体に対する影響が少ない架橋シリコーン粒子の水系サスペンション、架橋シリコーン粒子を含有するオイルの水系エマルジョンおよび化粧料原料に関する。

背景技術

架橋シリコーン粒子、界面活性剤および水からなる架橋シリコーン粒子の水系サスペンションや、架橋シリコーン粒子を含有するオイルの水系エマルジョンは知られている（特開昭63-309565号公報、特開平11-140191号公報、特開2000-281903号公報参照）。そしてこのようなサスペンションを水性塗料に添加すると塗膜に艶消し性が発現したり（特開平5-9409号公報参照）、水性化粧料に使用すると使用感が向上することが提案されている（特開平10-139624号公報および特開平10-175816号公報参照）。

これらの水系サスペンションや水系エマルジョンには、非イオン性界面活性剤、アニオン性界面活性剤、カチオン性界面活性剤、両イオン性界面活性剤またはこれらの混合物からなる界面活性剤が用いられており、特に化粧料用途に使用する場合には、架橋シリコーン粒子や架橋シリコーン粒子を含有するオイルの分散性が良好であることから、アルキルポリエーテルなどの非イオン性界面活性剤が好適に用いられている。

近年、これらの水系サスペンションや水系エマルジョンにおいて、それ自体の安定性や配合物への分散性を向上させつつ、環境に対する負荷の少ない界面活性剤の

選択が求められている。例えば、炭素数12～15のアルキル基を有するアルキルポリエーテルは環境への影響が懸念される化学物質として、P R T R (Pollutant Release and Transfer Register)の排出量等が義務付けられた指定化学物質に認定され、その使用が制限されるようになってきている。また、原料が牛脂等の獸脂由來の界面活性剤、特に、獸脂由來のアルキル基を有する界面活性剤は、厚生省医薬安全局長の「ウシ等由来物を原料として製造される医薬品等の品質及び安全性確保について(平成12年12月12日付け)」の通達により、化粧料等への使用が制限されつつある。

本発明者らは上記の課題を解決するため銳意検討した結果、架橋シリコーン粒子の水系サスペンションや架橋シリコーン粒子を含有するオイルの水系エマルジョンに使用する界面活性剤として、特定のN-アシル,N-ハイドロカーボンタウリンおよび／またはその塩を選択することにより、上記の課題を解決できることを見出して本発明に到達した。

すなわち、本発明の目的は、安定性に優れ、しかも、環境に対する負荷や人体に対する影響が少ない架橋シリコーン粒子の水系サスペンションおよび架橋シリコーン粒子を含有するオイルの水系エマルジョン、これらの水系サスペンションや水系エマルジョンを使用した化粧料原料を提供することにある。

発明の開示

20 本発明は、(A)平均粒径0.1～500μmの架橋シリコーン粒子、
(B)一般式(I)；



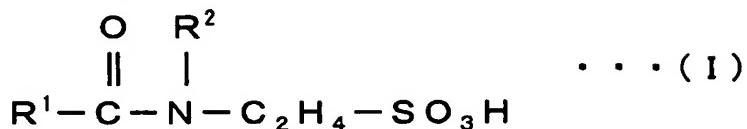
(式中、R¹およびR²は非置換もしくは置換の一価炭化水素基である。)で示されるN-アシル,N-ハイドロカーボンタウリンおよび／またはその塩、
25 (C)水からなることを特徴とする架橋シリコーン粒子の水系サスペンション、およ

び、該水系サスペンションからなる化粧料原料と、

(A)平均粒径0.1～500μmの架橋シリコーン粒子、

(D)オイル、

(B)一般式(I)；



5

(式中、R¹およびR²は非置換もしくは置換の一価炭化水素基である。)で示されるN-アシル,N-ハイドロカーボンタウリンおよび/またはその塩、

(C)水からなり、水中に分散している(D)成分の液滴中に(A)成分が含有されていることを特徴とする架橋シリコーン粒子を含有するオイルの水系エマルジョン、

10 および、該水系エマルジョンからなる化粧料原料に関する。

発明を実施するための最良の形態

はじめに、本発明の架橋シリコーン粒子の水系サスペンションについて詳細に説明する。

15 (A)架橋シリコーン粒子は本発明サスペンションの主成分であり、その平均粒径は0.1～500μmであり、好ましくは0.1～100μmであり、さらに好ましくは0.1～50μmであり、特に好ましくは0.5～50μmである。これは、平均粒径が上記範囲の下限未満である架橋シリコーン粒子は調製が難しく、また、上記範囲の上限を超えると化粧料や塗料等への分散性が低下する傾向があるからである。20 (A)成分の形状としては、例えば、球状、偏平形状、不定形状が挙げられ、化粧料や塗料等への分散性が特に良好であることから球状であることが好ましい。また、(A)成分の性状としては、例えば、硬質ゴム状、軟質ゴム状、ゲル状が挙げられる。

このような(A)成分を調製するための架橋性シリコーン組成物として具体的には、ヒドロシリル化反応架橋性シリコーン組成物、縮合反応架橋性シリコーン組成

物、有機過酸化物架橋性シリコーン組成物、紫外線架橋性シリコーン組成物が挙げられる。これらの中でも、ヒドロシリル化反応架橋性シリコーン組成物や縮合反応架橋性シリコーン組成物が好ましい。

ヒドロシリル化反応架橋性シリコーン組成物としては、例えば、アルケニル基を1分子中に少なくとも2個有するオルガノポリシロキサン、ケイ素原子結合水素原子を1分子中に少なくとも2個有するオルガノハイドロジェンポリシロキサンおよび白金系触媒を主成分とする組成物が挙げられる。

縮合反応架橋性シリコーン組成物としては、例えば、ケイ素原子に結合する水酸基またはアルコキシ基、オキシム基、アセトキシ基、アミノキシ基等の加水分解性基を1分子中に少なくとも2個有するオルガノポリシロキサン、ケイ素原子に結合するアルコキシ基、オキシム基、アセトキシ基、アミノキシ基等の加水分解性基を1分子中に少なくとも3個有するシラン系架橋剤および、有機錫化合物、有機チタン化合物等の縮合反応触媒を主成分とする組成物が挙げられる。好ましくは、ケイ素原子に結合する水酸基またはアルコキシ基を1分子中に少なくとも2個有するオルガノポリシロキサン、ケイ素原子に結合するアルコキシ基を1分子中に少なくとも3個有するシラン系架橋剤および、有機錫化合物、有機チタン化合物等の縮合反応触媒を主成分とする脱アルコール縮合反応架橋性シリコーン組成物である。

また、(A)成分は非架橋性オイルを含有することができる。このオイルは特に限定されないが、シリコーンオイル、有機オイルが挙げられる。非架橋性シリコーンオイルの分子構造としては、例えば、直鎖状、一部分岐を有する直鎖状、環状、分岐鎖状が挙げられ、好ましくは直鎖状、環状である。このようなシリコーンオイルとしては、例えば、分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン、環状ジメチルシロキサン、これらのシリコーンオイル中のメチル基の一部を、エチル基、プロピル基、ブチル基等のアルキル基、フェニル基、または3,3,3-トリフルオロプロピル基等で置換したシリコーンオイル、およびこれらのシリコーンオイルの混合物が挙げられる。非架橋性有機オイルとしては、例えば、流動パラフィン、イソパラフィン、ラウリン酸ヘキシル、ミリスチン酸イソプロピル、ミリスチン酸ミリスチル、ミリスチン酸セチル、ミリスチン酸2-オクチルドデシル、

パルミチン酸イソプロピル、パルミチン酸2-エチルヘキシル、ステアリン酸ブチル、オレイン酸デシル、オレイン酸2-オクチルドデシル、乳酸ミリスチル、乳酸セチル、酢酸ラノリン、ステアリルアルコール、セトステアリルアルコール、オレイルアルコール、アボガド油、アルmond油、オリブ油、カカオ油、ホホバ油、ゴマ油、サフラワー油、大豆油、ツバキ油、スクワラン、パーシック油、ヒマシ油、綿実油、ヤシ油、ポリプロピレングリコールモノオレート、ネオペンチルグリコール-2-エチルヘキサノエート、イソステアリン酸トリグリセライド、椰子油脂肪酸トリグリセライド、ポリオキシエチレンラウリルエーテル、ポリオキシプロピレンセチルエーテルが挙げられる。これらの中でも、架橋シリコーン粒子に対する親和性が優れることからシリコーンオイルが好ましい。またその25℃における粘度は、 $100,000\text{mm}^2/\text{s}$ 以下であることが好ましく、 $50,000\text{mm}^2/\text{s}$ 以下がより好ましく、 $10,000\text{mm}^2/\text{s}$ 以下がさらに好ましい。(A)成分中における非架橋性オイルの含有量は限定されないが、好ましくは50重量%以下であり、より好ましくは30重量%以下であり、さらに好ましくは10重量%以下である。これは、50重量%を超えると、(A)成分中に非架橋性オイルを保持しておくことができず、後記する架橋シリコーン粒子を含有するオイルの水系エマルジョンが形成される可能性があるためである。このような非架橋性オイルを含有する架橋シリコーン粒子は、前記の架橋性シリコーン組成物に非架橋性オイルを配合したり、架橋性シリコーン組成物の原料として低分子量シロキサンオリゴマーを含有するオルガノボリシロキサンを使用することによって製造することができる。

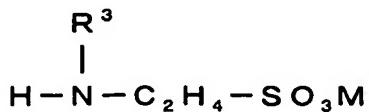
本発明サスペンション中、(A)成分の含有量は限定されないが、好ましくは25～80重量%であり、より好ましくは40～80重量%である。これは、(A)成分の含有量が上記範囲の下限未満であるとその用途が限定される懸念があり、一方、上記範囲の上限を超えると取扱作業性が低下して、化粧料や塗料等への分散性が低下する傾向があるからである。

(B)N-アシル,N-ハイドロカーボンタウリンおよび/またはその塩は本発明の特徴となる成分であり、界面活性剤として作用する。加えて、本発明サスペンション単独の安定性だけでなく他成分に配合した際の分散性や安定性を向上させ、し

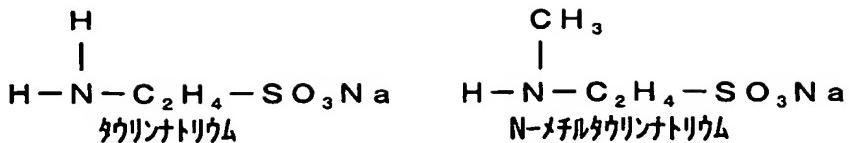
かも環境や人体に配慮した成分である。このような(B)成分は、一般式(I)；



で示されるN-アシル, N-ハイドロカーボンタウリンまたはその塩である。上式中、R'およびR²は非置換もしくは置換の一価炭化水素基であり、具体的には、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、デシル基、ドデシル基、ミリスチル基、パルミチル基、ステアリル基などのアルキル基；ビニル基、アリル基、ヘキセニル基、オレイル基などのアルケニル基；シクロペンチル基、シクロヘキシル基などのシクロアルキル基；フェニル基、トリル基、ナフチル基などのアリール基が例示される。このR'およびR²は10 同一でも異なっていてもよいが、R'はアルキル基かアルケニル基かシクロアルキル基が好ましく、炭素原子数5～30のアルキル基またはアルケニル基がより好ましい。R²はアルキル基が好ましく、メチル基が一般的である。N-アシルタウリンとは、一般に、上式において窒素原子に水素原子が結合した化合物（R²が水素原子である化合物）を指すが、本発明で使用するN-アシル, N-ハイドロカーボンタウリンは、窒素原子にアシル基と一価炭化水素基が結合していることを特徴とする。また、N-アシル, N-ハイドロカーボンタウリンの塩とは、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム等のアルカリ金属の水酸化物；炭酸ナトリウム等のアルカリ金属の弱酸塩；アンモニア、トリエタノールアミン、水酸化アンモニウム等の水溶性アミン；塩基性アミノ酸；タウリン塩のようなアルカリ性物質との中和によって15 形成される塩である。中和剤としてのタウリン塩は、一般式：



(式中、R³は水素原子またはアルキル基であり、Mはアルカリ金属である。)で示され、具体的には、次式で示される化合物が例示される。



このような(B)成分としては、N-ラウロイルメチルタウリンナトリウム、N-ミリストイルメチルタウリンナトリウム、N-オレオイルメチルタウリンナトリウム、N-ステアロイルメチルタウリンナトリウム、N-ヤシ油脂肪酸メチルタウリ

5 ナトリウム、N-ヤシ油脂肪酸メチルタウリンカリウム、N-ヤシ油脂肪酸メチルタウリンマグネシウム、N-パルミトイルメチルタウリンナトリウム、N-ステアロイルメチルタウリンカリウム、N-セチロイルメチルタウリンカリウムおよびこれらの未中和物が例示される。これら1種を単独で使用してもよく、複数組み合わせた混合物を使用してもよい。

10 本発明サスペンション中、(B)成分の含有量は限定されないが、好ましくは0.001～20重量%であり、特に好ましくは0.01～10重量%である。これは、(B)成分の含有量が上記範囲の下限未満であると化粧料や塗料等への分散性が低下する傾向があり、一方、上記範囲の上限を超えるとその用途が限定される懸念があるためである。

15 (C)水は(A)成分の分散媒であり、例えば、純水、イオン交換水を用いることができる。本発明サスペンジョン中、(C)成分の含有量は限定されないが、好ましくは5～75重量%であり、特に好ましくは10～60重量%である。

さらに本発明サスペンジョンには、その他任意の成分として、例えば、フェノキシエタノール、エタノール、i-プロパノール、t-ブタノール、エチレングリコール、プロピレングリコール、ジエチレングリコール等のアルコール；カルボキシビニルポリマー、カルボキシメチルセルロースナトリウム等の水溶性高分子；アミノ基含有シリコーンやポリエーテル基含有シリコーンなどの有機ケイ素系化合物、その他、防腐剤、抗菌剤、防カビ剤、防錆剤、芳香剤、顔料を配合することができる。また、本発明の目的を損なわない範囲であれば、他の成分との配合安定性をさらに向上させるために、ノニオン系界面活性剤以外の各種界面活性剤、例えば、ア

ニオン系界面活性剤、カチオン系界面活性剤、両性界面活性剤を使用してもよい。これらの成分は、単独あるいは複数組み合わせて使用してもよい。またその配合手順は特に限定されない。

本発明サスペンションを調製する方法は限定されず、例えば、(B)成分、(C)成分およびその他任意の成分からなる水溶液中に、前記したような架橋性シリコーン組成物を添加して分散させた後、該組成物を架橋する方法、また、前記したような架橋性シリコーン組成物から架橋触媒を除いたシリコーン組成物を、(B)成分、(C)成分およびその他任意の成分からなる水溶液中に添加して分散させた後、前記触媒を添加することにより、前記組成物を架橋する方法が挙げられる。後者の方法において、架橋触媒は、(B)成分の水溶液中に分散させた状態で添加することが好みしい。

次に、本発明の架橋シリコーン粒子を含有するオイルの水系エマルジョンについて詳細に説明する。

(A)架橋シリコーン粒子は本発明エマルジョンの主成分であり、その平均粒径は0.1～500μmであり、好ましくは0.1～100μmであり、より好ましくは0.1～50μmであり、特に好ましくは0.5～50μmである。これは、平均粒径が上記範囲の下限未満である架橋シリコーン粒子は調製が困難であり、一方、平均粒径が上記範囲の上限を超えるとエマルジョンの安定性を低下させる傾向があるからである。(A)成分の形状としては、例えば、球状、偏平形状、不定形状が挙げられるが、これらの中でも球状が好みしい。また、(A)成分の性状としては、例えば、硬質ゴム状、軟質ゴム状、ゲル状が挙げられる。

本発明エマルジョンにおいて、(A)成分を調製するための架橋性シリコーン組成物としては、例えば、ヒドロシリル化反応架橋性シリコーン組成物、縮合反応架橋性シリコーン組成物、有機過酸化物架橋性シリコーン組成物、紫外線架橋性シリコーン組成物が挙げられる。これらの中でも、ヒドロシリル化反応架橋性シリコーン組成物や縮合反応架橋性シリコーン組成物が好みしく、前記と同様の組成物が例示される。

(D)オイルも本発明エマルジョンの主成分であり、特に限定されないが、例えば、

シリコーンオイル、有機オイルが挙げられ、前記した非架橋性オイルと同様のものが例示される。中でも、架橋シリコーン粒子に対する親和性が優れていることからシリコーンオイルが好ましい。またその25℃における粘度は、100,000mm²/s以下であることが好ましく、50,000mm²/s以下がより好ましく、10,000mm²/s以下がさらに好ましい。このような(D)成分は液滴の形態で水中に分散し、その中に(A)架橋シリコーン粒子を含有する。従って(D)成分の液滴の平均粒径は(A)成分よりも大きく、具体的には、0.5～1000μmであることが好ましく、より好ましくは1～100μmである。

(D)成分の含有量は限定されず、(A)成分の吸油性に依存するが、(A)成分と(D)成分の合計重量に対して、好ましくは50重量%を超える量であり、特に好ましくは60重量%以上である。これは、(D)成分の含有量が50重量%以下であると(A)成分中に含有されてしまい、(D)成分中に(A)成分を含有することができなくなる懸念があるからである。

本発明エマルジョン中における(A)成分と(D)成分の含有量、即ち、架橋シリコーン粒子を含有するオイル液滴の含有量は限定されないが、好ましくは25～90重量%の範囲内であり、より好ましくは40～80重量%である。これは、上記範囲の下限未満であると用途が限定される懸念があり、一方、上記範囲の上限を超えると取扱作業性が低下して、化粧料や塗料等への分散性が低下する傾向があるからである。

(B)N-アシル,N-ハイドロカーボンタウリンおよび/またはその塩は本発明の特徴となる成分であり、界面活性剤として作用する。加えて、本発明エマルジョン単独の安定性だけでなく他成分に配合した際の分散性や安定性を向上させ、しかも環境や人体に配慮した成分である。具体的には、前記と同様のものが挙げられる。

本発明エマルジョン中、(B)成分の含有量は限定されないが、好ましくは0.01～20重量%であり、特に好ましくは0.01～10重量%である。これは、(B)成分の含有量が上記範囲の下限未満であると化粧料や塗料等への分散性が低下する傾向があり、一方、上記範囲の上限を超えると用途が限定される懸念があるからである。

(C)水は分散媒であり、例えば、純水、イオン交換水を用いることができる。本発明エマルジョン中、(C)成分の含有量は限定されないが、好ましくは5～75重量%であり、特に好ましくは10～60重量%である。

さらに本発明エマルジョンには、その他任意の成分として、例えば、フェノキシエタノール、エタノール、i-プロパノール、t-ブタノール、エチレングリコール、プロピレングリコール、ジエチレングリコール等のアルコール；カルボキシビニルポリマー、カルボキシメチルセルロースナトリウム等の水溶性高分子；アミノ基含有シリコーンやポリエーテル基含有シリコーンなどの有機ケイ素系化合物、その他、防腐剤、抗菌剤、防カビ剤、防錆剤、芳香剤、顔料を配合することができる。
また、本発明の目的を損なわない範囲であれば、他の成分との配合安定性をさらに向上させるために、アニオン系界面活性剤、カチオン系界面活性剤、両性界面活性剤、ノニオン系界面活性剤等の各種界面活性剤を使用してもよい。これらの成分は、単独あるいは複数組み合わせて使用してもよい。またその配合手順は特に限定されない。

本発明エマルジョンを調製する方法は限定されず、例えば、(B)成分、(C)成分およびその他任意の成分からなる水溶液中に、(D)成分を含有する架橋性シリコーン組成物を添加して分散させた後、前記組成物を架橋する方法、また、前記したような架橋性シリコーン組成物から架橋触媒を除き、かつ、(D)成分を含有するシリコーン組成物を、(B)成分、(C)成分およびその他任意の成分からなる水溶液中に添加して分散させた後、前記触媒を添加することにより、前記組成物を架橋する方法が挙げられる。後者の方法において、架橋触媒は(B)成分の水溶液中に分散させた状態で添加することが好ましい。

以上のような本発明の水系サスペンションおよび水系エマルジョンは安定性に優れ、かつ、環境に対する負荷や人体に対する影響が少ないという特徴を有する。
さらに、化粧料や塗料等に対する分散性や配合安定性が良好であり、これらに配合した場合に架橋シリコーン粒子の添加効果を十分に発揮することができるので、化粧料原料や塗料原料として有用である。特に、人体への適合性に優れるとともに潤いや滑らかさ等に優れた化粧機能性を有するので、化粧料に配合するシリコーン原

料として極めて好適である。

次に、本発明の化粧料原料について説明する。

本発明の化粧料原料は、上記した水系サスペンションや水系エマルジョンからなるが、本発明の目的を損なわない範囲であれば、化粧料との配合安定性をさらに向上させるために、シリコーンエマルジョンからなる化粧料原料の添加剤として公知

5 である他の成分を添加配合することが可能である。このような添加剤としては、

(B) 成分以外のアニオン系界面活性剤、ノニオン系界面活性剤、pH調整剤、防腐剤、防カビ剤、防錆剤などが挙げられる。これらの成分は、単独あるいは複数組み合わせて使用することができる。これらの成分の配合順序は、特に限定されない。

10 本発明の化粧料原料において、上記した水系サスペンションや水系エマルジョンの含有量は、30～100重量%であることが好ましく、50～100重量%であることがより好ましい。

アニオン系界面活性剤の具体例としては、N-アシル-L-グルタミン酸ジエタノールアミン、N-アシル-L-グルタミン酸トリエタノールアミン、N-アシル-L-グルタミン酸ナトリウム、アルカンスルホン酸ナトリウム、アルキル(12, 14, 16)硫酸アンモニウム、アルキル(11, 13, 15)硫酸トリエタノールアミン(1)、アルキル(11, 13, 15)硫酸トリエタノールアミン(2)、アルキル(12～14)硫酸トリエタノールアミン、アルキル硫酸トリエタノールアミン液、アルキル(12, 13)硫酸ナトリウム、アルキル硫酸ナトリウム液、イセチオン酸ナトリウム、イソステアリン乳酸ナトリウム、ウンデシレノイルアミドエチルスルホコハク酸二ナトリウム、オレイン硫酸トリエタノールアミン、オレイン硫酸ナトリウム、オレイン酸アミドスルホコハク二ナトリウム、オレイン酸カリウム、オレイン酸ナトリウム、オレイン酸モルホリン、オレオイルザルコシン、オレオイルメチルタウリンナトリウム、カリウム含有石けん素地、カリウム石けん用素地液、カリ石ケン、カルボキシル化ポリオキシエチレントリドデシルエーテル、カルボキシル化ポリオキシエチレントリドデシルエーテルナトリウム塩(3E.O.)、N-硬化牛脂脂肪酸アシル-L-グルタミン酸トリエタノールアミン、N-硬化牛脂脂肪酸アシル-L-グルタミン酸ナトリウム、硬化ヤシ油脂肪酸グリセリ

ル硫酸ナトリウム、ジウンデシレノイルアミドエチルスルホコハク酸ナトリウム、
ステアリル硫酸ナトリウム、ステアリン酸カリウム、ステアリン酸トリエタノール
アミン、ステアリン酸ナトリウム、N-ステアロイル-L-グルタミン酸ナトリウム、
ステアロイル-L-グルタミン酸二ナトリウム、スルホコハク酸ジオクチルナ
トリウム、スルホコハク酸ジオクチルナトリウム液、スルホコハク酸ポリオキシエ
チレンモノオレイルアミドジナトリウム(2 E. O.)液、スルホコハク酸ポリオキシエ
チレンラウロイルエタノールアミド二ナトリウム(5 E. O.)、スルホコハ
ク酸ラウリル二ナトリウム、セチル硫酸ジエタノールアミド、セチル硫酸ナトリウム、
石けん用素地、セトステアリル硫酸ナトリウム、トリデシル硫酸トリエタノ
ルアミン、パルミチン酸カリウム、パルミチン酸ナトリウム、パルミトイアルメチル
タウリンナトリウム、ヒマシ油脂肪酸ナトリウム液(30%)、ポリオキシエチレ
ンアルキルエーテル硫酸アンモニウム(3 E. O.)液、ポリオキシエチレンアル
キル(12, 13)エーテル硫酸ジエタノールアミン(3 E. O.)液、ポリオキ
シエチレンアルキルエーテル硫酸トリエタノールアミン(3 E. O.)液、ポリオ
キシエチレンアルキル(11, 13, 15)エーテル硫酸トリエタノールアミン(1
E. O.)、ポリオキシエチレンアルキル(12, 13)エーテル硫酸トリエタノ
ルアミン(3 E. O.)、ポリオキシエチレンアルキルエーテル硫酸ナトリウム(3
E. O.)液、ポリオキシエチレンアルキル(11, 13, 15)エーテル硫酸ナ
トリウム(1 E. O.)、ポリオキシエチレンアルキル(11~15)エーテル硫酸
ナトリウム(3 E. O.)、ポリオキシエチレンアルキル(12~14)エーテル硫
酸ナトリウム(3 E. O.)、ポリオキシエチレンアルキル(12~15)エーテ
ル硫酸ナトリウム(3 E. O.)、ポリオキシエチレンアルキル(12~14)スル
ホコハク酸二ナトリウム(7 E. O.)、ポリオキシエチレンウンデシルエーテル硫
酸ナトリウム、ポリオキシエチレンオクチルフェニルエーテル硫酸ナトリウム液、
ポリオキシエチレンオレイルエーテル硫酸アンモニウム、ポリオキシエチレンスル
ホコハク酸ラウリル二ナトリウム、ポリオキシエチレンノニルフェニルエーテル硫
酸ナトリウム、ポリオキシエチレンペントデシルエーテル硫酸ナトリウム、ポリオ

キシエチレンミリスチルエーテル硫酸トリエタノールアミン、ポリオキシエチレン
ミリスチルエーテル硫酸ナトリウム、ポリオキシエチレンミリスチルエーテル硫酸
ナトリウム(3 E. O.)、ポリオキシエチレンラウリルエーテル酢酸ナトリウム(1
6 E. O.)液、ポリオキシエチレンラウリルエーテル硫酸アンモニウム(2 E.
5 O.)、ポリオキシエチレンラウリルエーテル硫酸トリエタノールアミン、ポリオキ
シエチレンラウリルエーテル硫酸ナトリウム、ミリスチル硫酸ジエタノールアミン、
ミリスチル硫酸ナトリウム、ミリスチン酸カリウム、N-ミリストイル-L-グル
タミン酸ナトリウム、ミリストイルメチルアミノ酢酸ナトリウム、ミリストイルメ
チル-β-アラニンナトリウム液、ミリストイルメチルタウリンナトリウム、薬用
10 石ケン、ヤシ油アルキル硫酸マグネシウム・トリエタノールアミン、N-ヤシ油脂
肪酸アシル-L-グルタミン酸トリエタノールアミン、N-ヤシ油脂肪酸アシル-L-
グルタミン酸ナトリウム、ヤシ油脂肪酸エチルエステルスルホン酸ナトリウム、
ヤシ油脂肪酸カリウム、ヤシ油脂肪酸カリウム液、N-ヤシ油脂肪酸・硬化牛脂脂
肪酸アシル-L-グルタミン酸ナトリウム、ヤシ油脂肪酸サルコシン、ヤシ油脂肪
15 酸サルコシントリエタノールアミン、ヤシ油脂肪酸サルコシンナトリウム、ヤシ油
脂肪酸トリエタノールアミン、ヤシ油脂肪酸トリエタノールアミン液、ヤシ油脂肪
酸ナトリウム、ヤシ油脂肪メチルアラニンナトリウム、ヤシ油脂肪メチルアラニン
ナトリウム液、ヤシ油脂肪酸メチルタウリンカリウム、ヤシ油脂肪酸メチルタウリ
ンナトリウム、ラウリルアミノジプロピオン酸ナトリウム、ラウリルアミノジプロ
20 ピオン酸ナトリウム液(30%)、ラウリルスルホ酢酸ナトリウム、ラウリルベン
ゼンスルホン酸ナトリウム、ラウリル硫酸、ラウリル硫酸アンモニウム、ラウリル
硫酸カリウム、ラウリル硫酸ジエタノールアミン、ラウリル硫酸トリエタノールア
ミン、ラウリル硫酸ナトリウム、ラウリル硫酸マグネシウム、ラウリル硫酸モノエ
タノールアミン、ラウリン酸カリウム、ラウリン酸トリエタノールアミン、ラウリ
ン酸トリエタノールアミン液、ラウリン酸ナトリウム、ラウリン酸ミリスチン酸ト
リエタノールアミン、ラウロイル-L-グルタミン酸トリエタノールアミン、N-
25 ラウロイル-L-グルタミン酸ナトリウム、ラウロイルサルコシン、ラウロイルサ
ルコシンナカリウム、ラウロイルサルコシントリエタノールアミン液、ラウロイル

サルコシンナトリウム、ラウロイルメチル β -アラニンナトリウム液、ラウロイルメチルタウリンナトリウム、ラウロイルメチルタウリンナトリウム液が挙げられる。

ノニオン系界面活性剤の具体例としては、エチレングリコール脂肪酸エチル類、ポリエチレングリコール脂肪酸エステル類、プロピレングリコール脂肪酸エステル類、ポリプロピレングリコール脂肪酸エステル類、グリコール脂肪酸エステル類、トリメチロールプロパン脂肪酸エステル類、ペントエリスリット脂肪酸エステル類、グルコシド誘導体類、グリセリンアルキルエーテル脂肪酸エステル類、トリメチロールプロパンオキシエチレンアルキルエーテル類、脂肪酸アミド類、アルキロールアミド類、アルキルアミンオキシド類、ラノリンおよびその誘導体類、ヒマシ油誘導体類、硬化ヒマシ油誘導体類、ステロールおよびその誘導体類、ポリオキシエチレンアルキルエーテル類、ポリオキシエチレンアルキルアリルエーテル類、ポリオキシエチレンアルキルアミン類、ポリオキシエチレン脂肪酸アミド類、ポリオキシエチレンアルキロールアミド類、ポリオキシエチレンジエタノールアミン脂肪酸エステル類、ポリオキシエチレントリメチロールプロパン脂肪酸エステル類、ポリオキシエチレンアルキルエーテル脂肪酸エステル類、ポリオキシエチレンポリオキシプロピレンアルキルエーテル類、ポリオキシエチレンポリオキシプロピレン多価アルコールエーテル類、グリセリン脂肪酸エステル類、ポリグリセリン脂肪酸エステル類、ポリオキシエチングリセリン脂肪酸エステル類、ソルビタン脂肪酸エステル類、ポリオキシエチソルビタン脂肪酸エステル類、ショ糖脂肪酸エステル類が挙げられる。

pH調整剤の具体例としては、塩酸、硫酸、リン酸、リン酸水素ニアンモニウム、リン酸水素ニナトリウム、リン酸水素ニカリウム、リン酸ニ水素アンモニウム、リン酸ニ水素ナトリウム、リン酸ニ水素カリウム、リン酸三ナトリウム、リン酸三カリウム、酢酸、酢酸アンモニウム、酢酸ナトリウム、酢酸カリウム、クエン酸、クエン酸ナトリウム、クエン酸ニアンモニウム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、炭酸アンモニウム、炭酸水素ナトリウム、炭酸水素アンモニウム、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、アンモニア、トリエタノールアミンが挙げられる。

防腐剤、防カビ剤、防錆剤の具体例としては、安息香酸、安息香酸アルミニウム、

安息香酸ナトリウム、イソプロピルメチルフェノール、エチルヘキサンジオール、
塩化リゾチーム、塩酸クロルヘキシジン、オクチルフェノキシエタノール、オルト
フェニルフェノール、過ホウ酸ナトリウム、感光素 101 号、感光素 201 号、感
光素 301 号、感光素 401 号、グルコン酸クロルヘキシジン液、クレゾール、ク
5 ロラミン T、クロルキシレノール、クロルクレゾール、クロルフェネシン、クロル
ヘキシジン、クロロブタノール、酢酸レゾルシン、サリチル酸、サリチル酸ナトリ
ウム、臭化ドミフェン、ジンクピリチオン、ジンクピリチオン液、ソルビン酸、サ
オルビン酸カリウム、チアントール、チオキソロン、チモール、チラム、デヒドロ
酢酸、デヒドロ酢酸ナトリウム、トリクロロカルバニリド、トリクロロヒドロキシ
10 ジフェニルエーテル、パラオキシ安息香酸イソブチル、パラオキシ安息香酸イソブ
ロピル、パラオキシ安息香酸エチル、パラオキシ安息香酸ブチル、パラオキシ安息
香酸プロピル、パラオキシ安息香酸ベンジル、パラオキシ安息香酸メチル、パラオ
キシ安息香酸メチルナトリウム、パラクロルフェノール、パラフェノールスルホン
酸ナトリウム（二水和物）、ハロカルバン、フェノキシエタノール、フェノール、
15 ヘキサクロロファン、モノニトログアヤコール、モノニトログアヤコールナトリウ
ム、ヨウ化パラジメチルアミノスチリルヘプチルメチルリアゾリニウム、ラウリル
トリメチルアンモニウムトリクロロフェノキサイド、硫酸オキシキノリン、リン酸
オキシキノリン、レゾルシンが挙げられる。

このような本発明の化粧料原料は、次のような各種原料に添加混合することによ
り、皮膚に対する適合性が良好であり、かつ、優れた潤いや滑らかさを付与し得る
20 皮膚用化粧料が得られる。皮膚用化粧料の各種原料としては、前述のアニオン系界
面活性剤、ノニオン系界面活性剤、pH 調整剤、防腐剤、防カビ剤、防錆剤などの
他に、アボガド油、アルmond油、オリーブ油、カカオ脂、ゴマ油、小麦胚芽油、
サフラワー油、シアバター、タートル油、椿油、パーシック油、ヒマシ油、ブドウ
25 油、マカデミアナッツ油、ミンク油、卵黄油、モクロウ、ヤシ油、ローズヒップ油、
硬化油等の油脂；オレンジラフィー油、カルナウバロウ、キャンドリラロウ、鯨ロ
ウ、ホホバ油、モンタンロウ、ミツロウ、ラノリン等のロウ類；流動パラフィン、
ワセリン、パラフィン、セレシン、マイクロクリスタリンワックス、スクワラン等

の炭化水素；ラウリン酸、ミリスチン酸、パルミチン酸、ステアリン酸、オレイン酸、ベヘニン酸、ウンデシレン酸、オキシステアリン酸、リノール酸、ラノリン酸、合成脂肪酸等の高級脂肪酸；エチルアルコール、イソプロピルアルコール、ラウリルアルコール、セチルアルコール、セトステアリルアルコール、ステアリルアルコール、オレイルアルコール、ベヘニルアルコール、ラノリンアルコール、水素添加ラノリンアルコール、ヘキシルデカノール、オクチルドデカノール、イソステアリルアルコール等のアルコール；コレステロール、ジヒドロコレステロール、フィトステロール等のステロール；リノール酸エチル、ミリスチン酸イソプロピル、ラノリン脂肪酸イソプロピル、ラウリン酸ヘキシル、ミリスチン酸ミリスチル、ミリスチン酸セチル、ミリスチン酸オクチルドデシル、オレイン酸デシル、オレイン酸オクチルドデシル、ジメチルオクタン酸ヘキシルデシル、イソオクタン酸セチル、パルミチン酸セチル、トリミリスチン酸グリセリン、トリ（カブリル・カプリン酸）グリセリン、ジオレイン酸プロピレングリコール、トリイソステアリン酸グリセリン、トリイソオクタン酸グリセリン、乳酸セチル、乳酸ミリスチル、リンゴ酸ジイソステアリル等の脂肪酸エステル；グリセリン、プロピレングリコール、1, 3-ブチレングリコール、ポリエチレングリコール、d, 1-ピロリドンカルボン酸ナトリウム、乳酸ナトリウム、ソルビトール、ヒアルロン酸ナトリウム等の保湿剤；カチオン界面活性剤；ベタイン型、アミノ酸型、イミダゾリン型、レシチン等の両性界面活性剤；酸化鉄等の有色顔料、酸化亜鉛、酸化チタン、酸化ジリコニウム等の白色顔料、マイカ、タルク、セリサイト等の体质顔料等の顔料；ジメチルポリシリコサン、メチルフェニルポリシリコサン、オクタメチルテトラシクロシリコサン、デカメチルシクロペンタシロキサン、ポリエーテル変性シリコーンオイル、アミノ変性シリコーンオイル等のシリコーンオイル；精製水；カラギーナン、アルギン酸、アラビアゴム、トラガント、ペクチン、デンプン、キサンタンガム、ポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドン、ポリアクリル酸ソーダ、ポリエチレングリコール等の増粘剤、シリコーン・アクリル共重合体、シリコーンレジンやアクリルポリマー等の皮膜形成剤、さらには、紫外線吸収剤、抗菌剤、抗炎症剤、制汗剤、香料、酸化防止剤、噴射剤が例示される。尚、皮膚用化粧料として具体的には、ハンドク

リーム、スキンクリーム、ファンデーション、アイシャドウ、洗顔料、ボディーシャンプーが挙げられる。

また、本発明の化粧料原料を毛髪用化粧料に使用する場合には、前述のアニオン系界面活性剤、ノニオン系界面活性剤、pH調整剤や防腐剤、防カビ剤、防錆剤などの他に、皮膜形成剤、凍結防止剤、油分、乳化剤、潤滑剤、ふけ止め剤、酸化防止剤、キレート剤、紫外線吸収剤、香料、着色料といった各種原料を配合することによって、毛髪への付着性が良好であり、かつ、優れた潤いや滑らかさを付与し得る毛髪用化粧料を得ることができる。皮膜形成剤として具体的には、(メタ)アクリル系ラジカル重合性モノマーの重合体やシリコーン系化合物との共重合体、ポリ(N-アシルアルキレンイミン)、ポリ(N-メチルピロリドン)、フッ素基含有有機基やアミノ基で変性したシリコーンレジンや無官能性のシリコーンレジンが例示される。凍結防止剤は特に限定されないが、一般的には、エタノール、イソプロピルアルコール、1、3-ブチレングリコール、エチレングリコール、プロピレングリコール、グリセリンが挙げられる。油分としては、通常化粧料に用いられるものが使用できる。代表的な例として、マイクロクリスタリンワックス、パラフィンワックス、ゲイろう、ビーズワックス、ジャパンワックス、ショ糖ワックス等のワックス類またはそれらの混合物、流動パラフィン、 α -オレфинオリゴマー、スクワラン、スクワレン等の炭化水素油またはこれらの混合物、セタノール、ステアリルアルコール、イソステアリルアルコール、硬化ヒマシ脂誘導アルコール、ベヘニルアルコール、ラノリンアルコール等の直鎖状もしくは分岐状の飽和もしくは不飽和の非置換もしくはヒドロキシ置換高級アルコールまたはこれらの混合物、パルミチン酸、ミリスチン酸、オレイン酸、ステアリン酸、ヒドロキシステアリン酸、イソステアリン酸、ベヘニア酸、ヒマシ油脂肪酸、ヤシ油脂肪酸、牛脂脂肪酸等の直鎖状もしくは分岐状の飽和もしくは不飽和の非置換もしくはヒドロキシ置換高級脂肪酸またはこれらの混合物、オリーブ油、ヤシ油、なたね油、パーム油、パーム核油、ヒマシ油、硬化ヒマシ油、落花生油、牛脂、水添牛脂、ホホバ油、硬化ホホバ油、モノステアリン酸グリセリド、モノオレイン酸グリセリド、ジパルミチン酸グリセリド、トリミリスチン酸グリセリド、オレイルオレート、イソステアリル

イソステアレート、パルミチルベヘネート、イソプロピルパルミテート、ステアリルアセテート、ジヒドロキシステアリン酸エステル等のエステル、直鎖状、分枝状または環状の低分子量シリコーンオイル、アミノ変性シリコーンオイル、脂肪酸変性シリコーンオイル、アルコール変性シリコーンオイル、ポリエーテル変性シリコーンオイル、リン酸(塩)基含有シリコーンオイル、硫酸(塩)基含有シリコーンオイル、フッ素変性アルキル基含有シリコーンオイル、アルキル変性シリコーンオイル、エポキシ変性シリコーンオイル等のシリコーンオイル、高分子量シリコーン、溶剤に可溶で、室温で液状や生ゴム状、または熱可塑性を有するシリコーンレジンまたはこれらの混合物が挙げられる。これらのシリコーンは乳液状であることが好ましく、乳化剤としては、例えば、グリセリンモノステアレート、ソルビタンモノパルミテート、ポリオキシエチレンセチルエーテル、ポリオキシエチレンステアリン酸エステルおよびポリオキシエチレンソルビタンモノラウレートのような、従来一般的に使用されているものが挙げられる。潤滑剤としては、ヘキシレングリコール、ポリエチレングリコール 600、ピログルタミン酸ソーダ、グリセリンが挙げられる。ふけ止め剤としては、イオウ、硫化セレン、ジンクピリジウム-1-チオール-N-オキサイド、サリチル酸、2、4、4'-トリクロロー-2'-(ヒドロキシジフェニルエーテル、1-(ヒドロキシ-2-ピリドン化合物が例示される。酸化防止剤としては、BHA、BHT、γ-オリザノールが挙げられる。キレート剤としては、エチレンジアミン4酢酸、クエン酸、エタン-1-(ヒドロキシ-1、1-ジホスホニックアシッドおよびその塩が例示される。紫外線吸収剤としては、2-(ヒドロキシ-4-メトキシベンゾフェノンに代表されるベンゾフェノン誘導体、2-(2'-(ヒドロキシ-5'-(メチルフェニル)-ベンゾトリアゾールに代表されるベンゾトリアゾール誘導体、桂皮酸エステル等が例示される。さらには、グリセリン、プロピレングリコール、ジプロピレングリコール、1,3-ブチレングリコール等の多価アルコール、モノアルキルトリメチルアンモニウム塩、ジアルキルジメチルアンモニウム塩等の4級アンモニウム塩が好ましく、具体的には、塩化ステアリルトリメチルアンモニウム、塩化ベニルトリメチルアンモニウム、塩化ジステアリルジメチルアンモニウム、塩化ジベニルジメチルアンモニウム等の陽イオン性界面活性剤が挙げられる。

面活性剤、あるいは、両性界面活性剤、スクワレン、ラノリン、パーフルオロポリエーテル、カチオン性ポリマー等の感触向上剤、プロピレングリコール、グリセリン、ソルビトール等の保湿剤、メチルセルロース、カルボキシビニルポリマー、ヒドロキシエチルセルロース、ポリオキシエチレングリコールジステアレート、エタノール等の粘度調整剤、パール化剤、香料、色素、染料、噴射剤、ビタミン、養毛料、ホルモンなどの薬剤、トリクロサン、トリクロロカルバン等の殺菌剤、グリチルリチン酸カリウム、酢酸トコフェロール等の抗炎症剤、ジンクピリチオン、オクトピロックス等の抗フケ剤、メチルパラベン、ブチルパラベン等の防腐剤、噴霧剤、その他 Encyclopedia of Shampoo Ingredients (Micelle press, 1985) に収載されている成分が挙げられる。尚、毛髪用化粧料として具体的には、シャンプー、ヘアリンス、ヘアコンディショナー、ヘアトリートメント、セットローション、プロースタイリング剤、ヘアスプレー、泡状スタイリング剤、ジェル状スタイリング剤、ヘアリキッド、ヘアトニック、ヘアクリーム、育毛剤、養毛剤、染毛剤が挙げられる。

15

実施例

以下、本発明を実施例により詳細に説明する。実施例中、粘度は 25°Cにおける値である。架橋シリコーン粒子の水系サスペンションおよび架橋シリコーン粒子を含有するオイルの水系エマルジョンについて、下記の通り評価した。

20 ○水系サスペンション中の架橋シリコーン粒子の平均粒径

水系サスペンションをレーザー回折式粒度分布測定装置(株式会社堀場製作所製の LA-500)により測定して、得られたメジアン径(累積分布の 50%に相当する粒径 : 50%粒径)を架橋シリコーン粒子の平均粒径とした。また、累積 90%の粒径を 90%粒径とした。

25 ○水系エマルジョン中のオイル液滴の平均粒径

水系エマルジョンをレーザー回折式粒度分布測定装置(株式会社堀場製作所製の LA-500)により測定して、得られたメジアン径(累積分布の 50%に相当する粒径 : 50%粒径)をオイル液滴の平均粒径とした。また、累積 90%の粒径を 9

0 %粒径とした。

○水系エマルジョン中の架橋シリコーン粒子の平均粒径

水系エマルジョンから水を除去して得られた架橋シリコーン粒子を含有するオイル組成物を顕微鏡により観察して、10個の架橋シリコーン粒子の粒径の平均値
5 を求めた。

○安定性

水系サスペンションまたは水系エマルジョンを固形分濃度が50重量%となる
ように水で希釈した後、225mlのマヨネーズ瓶に150mlを仕込み、50°C
で2週間放置した。2週間後に分離した水層の厚みを測定することにより、安定性
10 を評価した。なお、この厚みが小さいほど安定性が良好であることを示している。

[実施例1]

約20mm²/sの環状ジメチルシロキサンオリゴマー混合物を2.5重量%含有す
る、400mm²/sの分子鎖両末端ジメチルビニルシロキシ基封鎖ジメチルポリシロ
15 キサン94.8重量部、50mm²/sの分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメ
チルシロキサン・メチルハイドロジェンシロキサン共重合体(ケイ素原子結合水素
原子の含有量=0.31重量%)5.2重量部(前記ジメチルポリシロキサン中のビ
ニル基に対するケイ素原子結合水素原子のモル比が0.95となる量)を均一に混
合した。次いでこれに、N-ラウロイル,N-メチルタウリンナトリウム0.5重
20 量部および純水20重量部からなる水溶液を加えてコロイドミルにより乳化した
後、純水39重量部で希釈してシリコーン組成物の水系エマルジョンを調製した。

一方、白金の1,3-ジビニルテトラメチルジシロキサン錯体の1,3-ジビニル
テトラメチルジシロキサンとイソプロピルアルコールの混合溶液1重量部を、イオ
ン交換水1重量部および前記と同じN-ラウロイル,N-メチルタウリンナトリウ
25 ム0.01重量部からなる水溶液中に均一に攪拌して、平均粒径が0.3μmである
白金触媒の水系エマルジョンを調製した。

次に、上記シリコーン組成物の水系エマルジョンに上記白金触媒の水系エマルジ
ョン(シリコーン組成物に対して白金属が重量単位で5ppmとなる量)を加えて

均一に攪拌した後、1日静置してシリコーン組成物をヒドロシリル化反応により架橋させて、環状ジメチルシロキサンオリゴマー混合物を含有する架橋シリコーン粒子の水系サスペンジョンを調製した。得られた水系サスペンジョンについて、架橋シリコーン粒子の平均粒径および安定性を測定した。その結果を表1に示した。

5 [実施例2]

約 $20\text{ mm}^2/\text{s}$ の環状ジメチルシロキサンオリゴマー混合物を2.5重量%含有する、 $400\text{ mm}^2/\text{s}$ の分子鎖両末端ジメチルビニルシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン94.8重量部、 $50\text{ mm}^2/\text{s}$ の分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルハイドロジェンシロキサン共重合体(ケイ素原子結合水素原子の含有量=0.31重量%)5.2重量部(前記ジメチルポリシロキサン中のビニル基に対するケイ素原子結合水素原子のモル比が0.95となる量)を均一に混合した。次いでこれに、N-ミリストイル,N-メチルタウリンナトリウム0.5重量部および純水20重量部からなる水溶液を加えてコロイドミルにより乳化した後、純水39重量部で希釈してシリコーン組成物の水系エマルジョンを調製した。

15 一方、白金の1,3-ジビニルテトラメチルジシロキサン錯体の1,3-ジビニルテトラメチルジシロキサンとイソプロピルアルコールの混合溶液1重量部を、イオン交換水1重量部および前記と同じN-ミリストイル,N-メチルタウリンナトリウム0.01重量部からなる水溶液中に均一に攪拌して、平均粒径が $0.3\mu\text{m}$ である白金触媒の水系エマルジョンを調製した。

20 次に、上記シリコーン組成物の水系エマルジョンに上記白金触媒の水系エマルジョン(シリコーン組成物に対して白金金属が重量単位で5ppmとなる量)を加えて均一に攪拌した後、1日静置してシリコーン組成物をヒドロシリル化反応により架橋させて、環状ジメチルシロキサンオリゴマー混合物を含有する架橋シリコーン粒子の水系サスペンジョンを調製した。得られた水系サスペンジョンについて、架橋シリコーン粒子の平均粒径および安定性を測定した。その結果を表1に示した。

25 [比較例1]

約 $20\text{ mm}^2/\text{s}$ の環状ジメチルシロキサンオリゴマー混合物を2.5重量%含有する、 $400\text{ mm}^2/\text{s}$ の分子鎖両末端ジメチルビニルシロキシ基封鎖ジメチルポリシロ

キサン 9 4. 8 重量部、 $50 \text{ mm}^2/\text{s}$ の分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルハイドロジェンシロキサン共重合体(ケイ素原子結合水素原子の含有量=0.31重量%) 5.2 重量部(前記ジメチルポリシロキサン中のビニル基に対するケイ素原子結合水素原子のモル比が0.95となる量)を均一に混合した。次いでこれに、ラウリル硫酸ナトリウム0.5重量部および純水20重量部からなる水溶液を加えてコロイドミルにより乳化した後、純水39重量部で希釈してシリコーン組成物の水系エマルジョンを調製した。

一方、白金の1,3-ジビニルテトラメチルジシロキサン錯体の1,3-ジビニルテトラメチルジシロキサンとイソプロピルアルコールの混合溶液1重量部を、イオン交換水1重量部および前記と同じラウリル硫酸ナトリウム0.01重量部からなる水溶液中に均一に攪拌して、平均粒径が $0.3 \mu\text{m}$ である白金触媒の水系エマルジョンを調製した。

次に、上記シリコーン組成物の水系エマルジョンに上記白金触媒の水系エマルジョン(シリコーン組成物に対して白金金属が重量単位で5ppmとなる量)を加えて均一に攪拌した後、1日静置してシリコーン組成物をヒドロシリル化反応により架橋させて、環状ジメチルシロキサンオリゴマー混合物を含有する架橋シリコーン粒子の水系サスペンションを調製した。得られた水系サスペンションについて、架橋シリコーン粒子の平均粒径および安定性を測定した。その結果を表1に示した。

[比較例2]

約 $20 \text{ mm}^2/\text{s}$ の環状ジメチルシロキサンオリゴマー混合物を2.5重量%含有する、 $400 \text{ mm}^2/\text{s}$ の分子鎖両末端ジメチルビニルシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン94.8重量部、 $50 \text{ mm}^2/\text{s}$ の分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルハイドロジェンシロキサン共重合体(ケイ素原子結合水素原子の含有量=0.31重量%) 5.2 重量部(前記ジメチルポリシロキサン中のビニル基に対するケイ素原子結合水素原子のモル比が0.95となる量)を均一に混合した。次いでこれに、ポリオキシエチレン(2)ラウリル硫酸ナトリウム25%水溶液2.0重量部および純水28.5重量部からなる水溶液を加えてコロイドミルにより乳化した後、純水39重量部で希釈してシリコーン組成物の水系エマルジョンを調製した。

ヨンを調製した。

一方、白金の 1, 3-ジビニルテトラメチルジシロキサン錯体の 1, 3-ジビニルテトラメチルジシロキサンとイソプロピルアルコールの混合溶液 1 重量部を、イオン交換水 0.6 重量部および前記と同じポリオキシエチレン (2) ラウリル硫酸ナトリウム 2.5 % 水溶液 0.04 重量部からなる水溶液中に均一に攪拌して、平均粒径が 0.3 μm である白金触媒の水系エマルジョンを調製した。

次に、上記シリコーン組成物の水系エマルジョンに上記白金触媒の水系エマルジョン(シリコーン組成物に対して白金金属が重量単位で 5 ppm となる量)を加えて均一に攪拌した後、1 日静置してシリコーン組成物をヒドロシリル化反応により架橋させて、環状ジメチルシロキサンオリゴマー混合物を含有する架橋シリコーン粒子の水系サスペンジョンを調製した。得られた水系サスペンジョンについて、架橋シリコーン粒子の平均粒径および安定性を測定した。その結果を表 1 に示した。

[表 1]

	実施例1	実施例2	比較例1	比較例2
架橋シリコーン粒子の粒径				
平均粒径(μm)	4.7	4.8	4.9	5.1
90%粒径	8.6	8.7	8.6	8.9
安定性(mm)	5-8	5-8	5-8	5-8

15

[実施例 3]

4.00 mm^2/s の分子鎖両末端ジメチルビニルシロキシ基封鎖メチルビニルシリカサン・ジメチルシリカサン共重合体(ビニル基の含有量 = 1.18 重量%) 1.8.02 重量部、5.5 mm^2/s の分子鎖両末端トリメチルシリカ基封鎖ジメチルシリカサン・メチルハイドロジェンシリカサン共重合体(ケイ素原子結合水素原子の含有量 = 0.48 重量%) 1.98 重量部(前記メチルビニルシリカサン・ジメチルシリカサン共重合体中のビニル基に対するケイ素原子結合水素原子のモル比が 0.95 と

なる量)、および $100\text{ mm}^2/\text{s}$ の分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン 80 重量部を均一に混合した。次いでこれに、N-ラウロイル,N-メチルタウリンナトリウム 0.5 重量部および純水 20 重量部からなる水溶液を加えてコロイドミルにより乳化した後、純水 39 重量部で希釈してシリコーン組成物の水系エマルジョンを調製した。

一方、白金の 1,3-ジビニルテトラメチルジシロキサン錯体の 1,3-ジビニルテトラメチルジシロキサンとイソプロピルアルコールの混合溶液 1 重量部を、イオン交換水 1 重量部および前記と同じ N-ラウロイル,N-メチルタウリンナトリウム 0.01 重量部からなる水溶液中に均一に攪拌して、平均粒径が $0.3\text{ }\mu\text{m}$ である白金触媒の水系エマルジョンを調製した。

次に、上記シリコーン組成物の水系エマルジョンに上記白金触媒の水系エマルジョン(シリコーン組成物に対して白金属が重量単位で 5 ppm となる量)を加えて均一に攪拌した後、1 日静置してシリコーン組成物をヒドロシリル化反応により架橋させて、架橋シリコーン粒子を含有するジメチルポリシロキサンオイルの水系エマルジョンを調製した。得られた水系エマルジョンについて、ジメチルポリシロキサンオイル液滴の平均粒径、架橋シリコーン粒子の平均粒径および安定性を測定した。その結果を表 2 に示した。

[実施例 4]

$400\text{ mm}^2/\text{s}$ の分子鎖両末端ジメチルビニルシロキシ基封鎖メチルビニルシロキサン・ジメチルシロキサン共重合体(ビニル基の含有量 = 1.18 重量%) 18.02 重量部、 $55\text{ mm}^2/\text{s}$ の分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルハイドロジェンシロキサン共重合体(ケイ素原子結合水素原子の含有量 = 0.48 重量%) 1.98 重量部(前記メチルビニルシロキサン・ジメチルシロキサン共重合体中のビニル基に対するケイ素原子結合水素原子のモル比が 0.95 となる量)、および $100\text{ mm}^2/\text{s}$ の分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン 80 重量部を均一に混合した。次いでこれに、N-ミリストイル,N-メチルタウリンナトリウム 0.5 重量部および純水 20 重量部からなる水溶液を加えてコロイドミルにより乳化した後、純水 39 重量部で希釈してシリコーン組

成物の水系エマルジョンを調製した。

一方、白金の1, 3-ジビニルテトラメチルジシロキサン錯体の1, 3-ジビニルテトラメチルジシロキサンとイソプロピルアルコールの混合溶液1重量部を、イオン交換水1重量部および前記と同じN-ミリストイル,N-メチルタウリンナトリウム0.01重量部からなる水溶液中に均一に攪拌して、平均粒径が0.3μmである白金触媒の水系エマルジョンを調製した。

次に、上記シリコーン組成物の水系エマルジョンに上記白金触媒の水系エマルジョン(シリコーン組成物に対して白金金属が重量単位で5ppmとなる量)を加えて均一に攪拌した後、1日静置してシリコーン組成物をヒドロシリル化反応により架橋させて、架橋シリコーン粒子を含有するジメチルポリシロキサンオイルの水系エマルジョンを調製した。得られた水系エマルジョンについて、ジメチルポリシロキサンオイル液滴の平均粒径、架橋シリコーン粒子の平均粒径および安定性を測定した。その結果を表2に示した。

[比較例3]

400mm²/sの分子鎖両末端ジメチルビニルシロキシ基封鎖メチルビニルシロキサン・ジメチルシロキサン共重合体(ビニル基の含有量=1.18重量%)18.02重量部、55mm²/sの分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルハイドロジェンシロキサン共重合体(ケイ素原子結合水素原子の含有量=0.48重量%)1.98重量部(前記メチルビニルシロキサン・ジメチルシロキサン共重合体中のビニル基に対するケイ素原子結合水素原子のモル比が0.95となる量)、および100mm²/sの分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン80重量部を均一に混合した。次いでこれに、ラウリル硫酸ナトリウム0.5重量部および純水20重量部からなる水溶液を加えてコロイドミルにより乳化した後、純水39重量部で希釈してシリコーン組成物の水系エマルジョンを調製した。

一方、白金の1, 3-ジビニルテトラメチルジシロキサン錯体の1, 3-ジビニルテトラメチルジシロキサンとイソプロピルアルコールの混合溶液1重量部を、イオン交換水1重量部および前記と同じラウリル硫酸ナトリウム0.01重量部からな

る水溶液中に均一に攪拌して、平均粒径が $0.3 \mu\text{m}$ である白金触媒の水系エマルジョンを調製した。

次に、上記シリコーン組成物の水系エマルジョンに上記白金触媒の水系エマルジョン(シリコーン組成物に対して白金金属が重量単位で 5 ppm となる量)を加えて
5 均一に攪拌した後、1 日静置してシリコーン組成物をヒドロシリル化反応により架橋させて、架橋シリコーン粒子を含有するジメチルポリシロキサンオイルの水系エマルジョンを調製した。得られた水系エマルジョンについて、ジメチルポリシロキサンオイル液滴の平均粒径、架橋シリコーン粒子の平均粒径および安定性を測定した。その結果を表 2 に示した。

10 [比較例 4]

400 mm²/s の分子鎖両末端ジメチルビニルシロキシ基封鎖メチルビニルシロキサン・ジメチルシロキサン共重合体(ビニル基の含有量 = 1.18 重量%) 18.02 重量部、55 mm²/s の分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルハイドロジェンシロキサン共重合体(ケイ素原子結合水素原子の含有量 = 0.48 重量%) 1.98 重量部(前記メチルビニルシロキサン・ジメチルシロキサン共重合体中のビニル基に対するケイ素原子結合水素原子のモル比が 0.95 となる量)、および 100 mm²/s の分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン 8.0 重量部を均一に混合した。次いでこれに、ポリオキシエチレン(2) ラウリル硫酸ナトリウム 2.5% 水溶液 2.0 重量部および純水 28.5 重量部からなる水溶液を加えてコロイドミルにより乳化した後、純水 3.9 重量部で希釈してシリコーン組成物の水系エマルジョンを調製した。

一方、白金の 1,3-ジビニルテトラメチルジシロキサン錯体の 1,3-ジビニルテトラメチルジシロキサンとイソプロピルアルコールの混合溶液 1 重量部を、イオン交換水 0.6 重量部および前記と同じポリオキシエチレン(2) ラウリル硫酸ナトリウム 2.5% 水溶液 0.04 重量部からなる水溶液中に均一に攪拌して、平均粒径が $0.3 \mu\text{m}$ である白金触媒の水系エマルジョンを調製した。

次に、上記シリコーン組成物の水系エマルジョンに上記白金触媒の水系エマルジョン(シリコーン組成物に対して白金金属が重量単位で 5 ppm となる量)を加えて

均一に攪拌した後、1日静置してシリコーン組成物をヒドロシリル化反応により架橋させて、架橋シリコーン粒子を含有するジメチルポリシロキサンオイルの水系エマルジョンを調製した。得られた水系エマルジョンについて、ジメチルポリシロキサンオイル液滴の平均粒径、架橋シリコーン粒子の平均粒径および安定性を測定した。その結果を表2に示した。

[表2]

	実施例3	実施例4	比較例3	比較例4
ジメチルポリシロキサンオイル液滴の粒径				
平均粒径(μm)	4.0	4.3	4.3	4.5
90%粒径	7.4	8.4	7.5	8.0
架橋シリコーン粒子の粒径				
平均粒径(μm)	3	3	3	3
安定性(mm)	4-7	4-7	4-7	4-7

[実施例5]

10 実施例1で調製した架橋シリコーン粒子の水系サスペンションまたは、実施例4で調製した架橋シリコーン粒子を含有するジメチルポリシロキサンオイルの水系エマルジョンを用いて、表3に示した組成の皮膚用シャンプー組成物①,②を調製した。この皮膚用シャンプー組成物の配合安定性および使用感を、下記の方法に従って測定した。その結果を表3に示した。

15 ○配合安定性

調製直後および50°Cにて1ヶ月間保存後のシャンプー組成物の外観を評価した。評価結果は、次のようにして表した。

◎：均一で変化は認められなかった。

△：上部に若干のクリーミングが認められた。

×：2層に完全に分離した。

○使用感

パネラー5人の腕部を、皮膚用シャンプー組成物を用いて30秒間洗浄した後、流水で洗い流した。次いで乾いたタオルで水分をよく拭き取り、乾燥後の感触を評価した。

[比較例5]

比較例1で調製した架橋シリコーン粒子の水系サスペンションまたは、比較例4で調製した架橋シリコーン粒子を含有するジメチルポリシロキサンオイルの水系エマルジョンを用いて、表3に示した組成の皮膚用シャンプー組成物③,④を調製した。この皮膚用シャンプー組成物の配合安定性および使用感を、実施例5と同様にして測定した。その結果を表3に示した。

[表3]

皮膚用シャンプー組成物		実施例 5		比較例 5	
		①	②	③	④
組成%	ラウロイルサルコシンナトリウム (30%水溶液)	15.0	15.0	15.0	15.0
	スルホカク酸ラウリル2ナトリウム (27%水溶液)	15.0	15.0	15.0	15.0
	水系サスペンション (実施例 1)	10.0	-	-	-
	水系サスペンション (比較例 1)	-	-	10.0	-
	水系エマルジョン (実施例 4)	-	10.0	-	-
	水系エマルジョン (比較例 4)	-	-	-	10.0
	イオン交換水	60.0	60.0	60.0	60.0
結果	配合安定性	調製直後	◎	◎	◎
		50°C, 1ヶ月後	◎	◎	△
感触評価		滑らか、 すべすべ でしっと り感良好	滑らか、 すべすべ でしっと り感良好	滑らかさ 若干不足 僅かに かさかさ 感あり	滑らかさ 若干不足 僅かに かさかさ 感あり

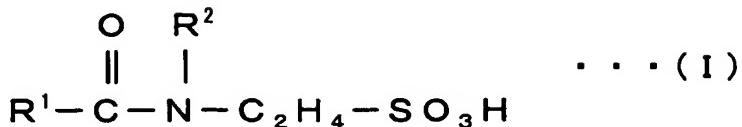
産業上の利用可能性

本発明の架橋シリコーン粒子の水系サスペンションおよび架橋シリコーン粒子を含有するオイルの水系エマルジョンは、界面活性剤として特定のN-アシル,N-ハイドロカーボンタウリンまたはその塩を使用しているので安定性に優れ、かつ、環境に対する負荷や人体に対する影響が少ないという特徴を有する。このような本発明の水系サスペンションおよび水系エマルジョンは、人体への適合性に優れるとともに潤いや滑らかさ等に優れた化粧機能性を有するので、化粧料原料として極めて有用である。

請求の範囲

1. (A) 平均粒径 0.1 ~ 500 μm の架橋シリコーン粒子、

(B) 一般式 (I) ;



5

(式中、R¹およびR²は非置換もしくは置換の一価炭化水素基である。) で示されるN-アシル,N-ハイドロカーボンタウリンおよび/またはその塩、および、

(C) 水からなることを特徴とする、架橋シリコーン粒子の水系サスペンション。

10 2. (A) 成分が非架橋性オイルを含有する架橋シリコーン粒子であることを特徴とする、請求項1に記載の水系サスペンション。

3. (A) 成分が25~80重量%、(B) 成分が0.001~20重量%、(C) 成分が5~75重量%からなることを特徴とする、請求項1に記載の水系サスペンション。

15 4. (A) 平均粒径 0.1 ~ 500 μm の架橋シリコーン粒子、

(D) オイル、

(B) 一般式 (I) ;



(式中、R¹およびR²は非置換もしくは置換の一価炭化水素基である。) で示され

20 るN-アシル,N-ハイドロカーボンタウリンおよび/またはその塩、および、

(C)水からなり、水中に分散している(D)成分の液滴中に(A)成分が含有されていることを特徴とする、架橋シリコーン粒子を含有するオイルの水系エマルジョン。

5. (A)成分を含有する(D)成分が25～90重量%、(B)成分が0.001～20重量%、(C)成分が5～75重量%からなることを特徴とする、請求項4に記載の水系エマルジョン。

6. 請求の範囲第1～3項のいずれか1項に記載の水系サスペンションからなる化粧料原料。

7. 請求の範囲第4項または第5項に記載の水系エマルジョンからなる化粧料原料。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP03/10888

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl⁷ C08L83/04, A61K7/00, A61K7/075

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
Int.Cl⁷ C08L83/00-83/16, A61K7/00-7/50, C08G77/00-77/62,
C08J3/00-3/28

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched			
Jitsuyo Shinan Koho Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1926-1996 1971-2003	Jitsuyo Shinan Toroku Koho Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1996-2003 1994-2003

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
WPI/L, CAS, ONLINE

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 11-140191 A (Shin-Etsu Chemical Co., Ltd.), 25 May, 1999 (25.05.99), Claim 1; Par. No. [0012] (particularly, line 8, in this paragraph) (Family: none)	1-7
E, A	JP 2003-286147 A (Kose Corp.), 07 October, 2003 (07.10.03), Claim 2 (Family: none)	1-7

Further documents are listed in the continuation of Box C.

See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T"	later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X"	document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y"	document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&"	document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means		
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed		

Date of the actual completion of the international search
13 November, 2003 (13.11.03)

Date of mailing of the international search report
02 December, 2003 (02.12.03)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/10888

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 11-217324 A (DOW CORNING TORAY SILICONE CO., LTD.), 10 August, 1999 (10.08.99), Claim 1; Par. Nos. [0005], [0007] (particularly, line 11, in this paragraph), Par. No. [0012] (Family: none)	1-7
A	JP 11-506125 A (The Procter & Gamble Co.), 02 June, 1999 (023.06.99), Claims 1, 4, 17 to 29; page 14, line 3 from the bottom & WO 97/32560 A1	1-7
P,A	WO 02/072703 A1 (DOW CORNING TORAY SILICONE CO., LTD.), 19 September, 2002 (19.09.02), Claims 1 to 16 (Family: none)	1-7
P,A	WO 02/088253 A1 (DOW CORNING TORAY SILICONE CO., LTD.), 07 November, 2002 (07.11.02), Claims 1 to 18 & JP 2003-12930 A	1-7
P,A	WO 02/094213 A2 (DOW CORNING TORAY SILICONE CO., LTD.), 28 November, 2002 (28.11.02), Claims 1 to 16 & JP 2002-348474 A	1-7
A	JP 4-296398 A (Shiseido Co., Ltd.), 20 October, 1992 (20.10.92), Claims 1 to 2 (Family: none)	1-7
A	JP 3-17006 A (Gakken Co., Ltd.), 25 January, 1991 (25.01.91), Claims 1 to 4 (Family: none)	1-7
A	EP 1151743 A2 (KAO CORP.), 07 November, 2001 (07.11.01), Claims 1 to 6 & JP 2002-12517 A & JP 2002-87931 A	1-7
A	JP 2-243612 A (DOW CORNING TORAY SILICONE CO., LTD.), 27 September, 1990 (27.09.90), Claims 1 to 3 & EP 381166 A2 & US 4980167 A	1-7

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/10888

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 56-36546 A (DOW CORNING TORAY SILICONE CO., LTD.), 09 April, 1981 (09.04.81), Claims & DE 3031157 A1 & US 4248751 A	1-7

A. 発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC))

Int. Cl' C08L 83/04, A61K 7/00,
A61K 7/075,

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))

Int. Cl' C08L 83/00- 83/16, A61K 7/00- 7/50,
C08G 77/00- 77/62, C08J 3/00- 3/28,

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年
日本国公開実用新案公報 1971-2003年
日本国実用新案登録公報 1996-2003年
日本国登録実用新案公報 1994-2003年

国際調査で使用した電子データベース(データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI/L
CAS ONLINE

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	J P 11-140191 A (信越化学工業株式会社) 1999.05.25, 請求項1, 段落[0012] (特にこの段落中の第8行) (ファミリーなし)	1-7
EA	J P 2003-286147 A (株式会社コーワー) 2003.10.07, 請求項2 (ファミリーなし)	1-7
A	J P 11-217324 A (東レ・ダウコーニング・シリコン株式会社) 1999.08.10, 請求項1, 段落[0005], 段落[0007] (特にこの段落中の第11行), 段落[0012] (ファミリーなし)	1-7

C欄の続きにも文献が列挙されている。

パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

- 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
- 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
- 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献(理由を付す)
- 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
- 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

- 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
- 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
- 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
- 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

13.11.03

国際調査報告の発送日

02.12.03

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)
郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官(権限のある職員)

前田 孝泰

4 J 9456



電話番号 03-3581-1101 内線 3457

C(続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	J P 11-506125 A(ザ、プロクター、エンド、ギャンブル、カンパニー) 1999.06.02, 請求項1, 請求項4, 請求項17~29, 第14頁下から 第3行&WO 97/32560 A1	1-7
PA	WO 02/072703 A1 (DOW CORNING TORAY SILICONE CO., LTD.) 2002.09.19, 請求の範囲1~16(ファミリーなし)	1-7
PA	WO 02/088253 A1 (DOW CORNING TORAY SILICONE CO., LTD.) 2002.11.07, claim 1~18& J P 2003-12930 A	1-7
PA	WO 02/094213 A2 (DOW CORNING TORAY SILICONE CO., LTD.) 2002.11.28, claim 1~16& J P 2002-348474 A	1-7
A	J P 4-296398 A(株式会社資生堂) 1992.10.20, 請求項1~2(ファミリーなし)	1-7
A	J P 3-17006 A(株式会社学習研究社) 1991.01.25, 請求項1~4(ファミリーなし)	1-7
A	E P 1151743 A2(KAO CORPORATION) 2001.11.07, claim 1~6 J P 2002-12517 A& J P 2002-87931 A	1-7
A	J P 2-243612 A(東レ・ダウコーニング・シリコン株式会社) 1990.09.27, 請求項1~3 & E P 381166 A2& U S 4980167 A	1-7
A	J P 56-36546 A(ダウ・コーニング・コーポレーション) 1981.04.09, 特許請求の範囲 & D E 3031157 A1& U S 4248751 A	1-7